

Ni₃Fe合金における磁気特性の規則度依存性

著者	籾福 寛
号	1812
発行年	1997
URL	http://hdl.handle.net/10097/10619

氏 名	はた ふく ひろし 簾 福 寛
授 与 学 位	博士 (工学)
学位授与年月日	平成 10 年 3 月 13 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 2 項
最 終 学 歴	昭和 38 年 3 月 岩手大学工学部電気工学科卒業
学位論文題目	Ni ₃ Fe 合金における磁気特性の規則度依存性
論文審査委員	主査 東北大学教授 荒井 賢一 東北大学教授 高橋 研 東北大学教授 杉田 愼 東北大学教授 中村 慶久

論 文 内 容 要 旨

近年、パーマロイは微細加工されたり薄膜素子として用いられるようになった。パーマロイを小型素子や薄膜とした場合、一つは形状の点から素子や薄膜に本来の軟磁性を発揮させることは難しい。また、製作条件も多様で、それらの条件と磁気特性との関連を一般的、統一的に議論することは困難である。一方、パーマロイは、発明当初から電気機器への応用研究が主体であり、組成や熱処理法などについて単純、純粋な形で研究されたことはほとんどなかった。

本来、パーマロイの高透磁率は 78% Ni-Fe 合金組成と特異な熱処理によって達成されたものである。すなわち、パーマロイ発明当初の特異な熱処理は、結晶の欠陥を除去すると同時に原子配列の不規則化を行い、合金内部の原子環境と磁気環境を一様にする操作であった。パーマロイ系合金の中で、合金内の原子配置を明示できるものは 75at% Ni-Fe 合金で、この合金は長時間の熱処理により Ni₃Fe 規則合金となる。

本研究では、原子環境の指標として原子配列の規則度に着目し、Ni₃Fe 合金における規則-不規則状態変化と磁性との関連を実験的に示すことを目的とした。規則状態は、組成や熱処理法に依存し、規則度は規則合金の磁性を支配する主要因である。

第 1 章は緒論である。はじめに、本研究に至る経緯と動機を述べ、続いて鉄ニッケル合金の状態図をもとに、Ni₃Fe 規則合金の物理的特性を概説している。

理想的な Ni₃Fe 規則合金は、面心立方格子の面心位置にニッケル、格子点に鉄が配置され二つの原子が交互に配列する。しかし、熱処理温度の上昇とともに原子配列は乱れ、図 1・1 に示すように逆位相領域 (APD) と逆位相境界 (APB) が発生する。一方、塑性変型させた場合には図 1・2

のように二り面上にAPBと転位が発生する．これらの規則配列は規則－不規則臨界温度以上の熱処理で消滅し，配列は不規則になる．本研究では，熱処理の場合と塑性変型の場合の，二つの異なる原子配列状態と磁気特性との関連を実験的に示してゆく．

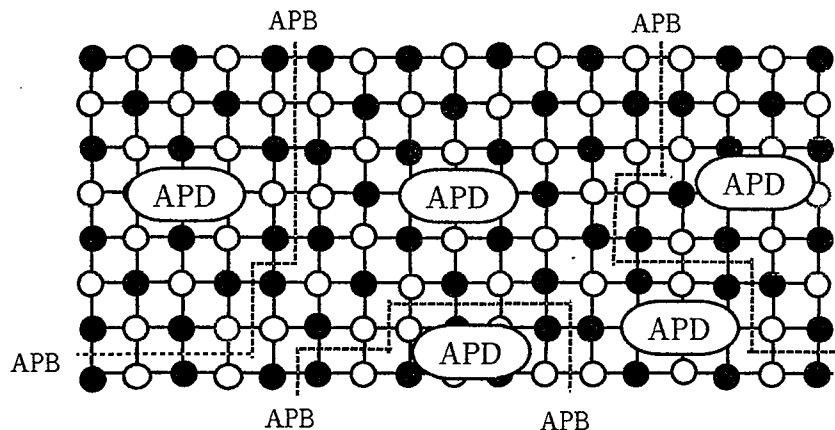


図 1 ・ 1 熱処理による A_3B 規則合金の APD と AP

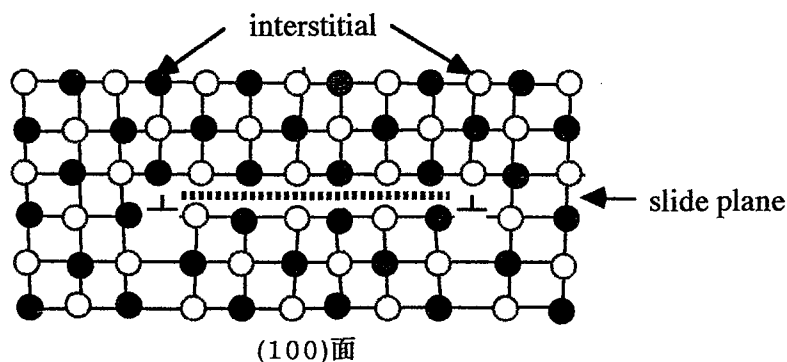


図 1 ・ 2 変型による A_3B 規則合金の APB(.....) と転位 (⊥)

第 2 章では，実験試料の作製法と試料の規則度の評価について述べている．はじめに Ni_3Fe 規則合金の規則度の定義を示し，本研究における規則度の評価法を示す．

Ni_3Fe 合金の結晶格子は格子点と面心位置の二つの部分格子に分けられ，各部分格子における原子の占有状況を示す指標，すなわち規則度 S が定義される．規則度 S の測定は X 線回折による (100) 規則格子線の積分強度 I_{100} と (200) 基本線の積分強度 I_{200} の比によって次式のように表される．

$$\frac{I_{100}}{I_{200}} = S^2 \frac{(f_{Ni} - f_{Fe})^2}{(3f_{Ni} + f_{Fe})^2}$$

ここで、 f_{Ni} と f_{Fe} は原子散乱因子であるが、それぞれ鉄とニッケルの原子番号を代入すると、完全な規則状態、 $S=1$ と仮定した場合においてもこの値は0.00033となり、X線による規則度の評価はきわめて困難である。しかし、1975年、D. G. Moriss等はX線回折法と電子顕微鏡観察により Ni_3Fe 合金の規則度をはじめて評価した。

D. G. Moriss等は、規則度を上げるために種々の熱処理法を試みた。本研究では、規則状態を実現するためD. G. Moriss等の熱処理法を改良した方法を提案した。それはできるだけ短い時間で、また化学量論組成の周辺においても規則状態に接近できる方法である。

一方、1953年、R. M. Bozorthが論文「Permalloy Problem」に示したように、 K_1 は規則－不規則状態変化に敏感である。また、1957年、B. G. Liashchenko等は、中性子線回折によって規則度 S を測定し、さらに S と K_1 とに直接的な関係のあることを示した。本研究においても種々の熱処理を行い、熱処理条件と K_1 との関係を求め、中性子線回折による結果と比較し、 K_1 の値から規則度 S を評価する方法を示した。

第3章では、作製された Ni_3Fe 規則合金における磁気ひずみ定数 λ の規則度依存性とニッケル濃度依存性を示している。

Ni_3Fe 合金の磁気ひずみ定数 λ_{111} 、 λ_{100} は、不規則状態ではこれまでの研究結果と同じである。しかし、規則状態では不規則状態での値と大きさが入れ替わった。本章ではさらに、磁気ひずみに関連して格子定数と弾性定数を測定し、それらの規則度依存性も測定した。

Ni_3Fe 合金の弾性定数は、規則状態で $c_{11}=250\text{ GPa}$ 、 $c_{12}=200\text{ GPa}$ 、 $c_{44}=110\text{ GPa}$ で、Ni濃度依存性はほとんど認められない。規則－不規則状態変化においても、 c_{11} と c_{44} には変化はないが、 c_{12} は200 GPaから170 GPaまでおよそ15%減少した。 Ni_3Fe 規則合金における弾性定数の測定は、本研究において初めて行われた。

第4章では、 Ni_3Fe 規則合金に存在する磁気異方性と規則度との関連を示している。

Ni_3Fe 規則合金には合金固有の異方性と、他の原因から誘発される磁気異方性とがある。固有の異方性は結晶磁気異方性と磁気ひずみによる異方性である。本論文では結晶磁気異方性をトルク測定から求め、磁気ひずみによる異方性は磁気ひずみ定数と弾性定数を用いて算出した。誘導磁気異方性については圧延誘導磁気異方性を測定した。

結晶磁気異方性定数 K_1 の結果は、規則状態においてこれまで報告された値より1.5倍大きく、本実験試料の規則度が高いことを実証した。また $|K_1|$ の熱処理温度依存性は、規則－不規則臨界温度 $T_c=500^\circ\text{C}$ 付近で大きく減少し、 K_1 が規則度 S と直接的な関係にあることを示した。

さらに本章では、磁気ひずみ定数 λ と弾性定数 c_{ij} の結果から磁気ひずみによる変形エネルギー定数 K_λ を算出し、結晶磁気異方性定数 K_1 と比較した。不規則状態における K_1 は75%Ni付近でゼロとなるから、 K_λ の寄与を無視することはできない。すなわち、パーマロイのように K_1 がゼロに近い場合、素子の設計に際しては K_λ の効果を考慮する必要がある。

一方、圧延磁気異方性は Ni_3Fe 規則合金棒を圧縮し、形状効果による影響を除くため測定試料を球に整形し、トルク測定を行った。その結果、10%圧縮した Ni_3Fe 規則合金には圧縮方向を困難方向とする一軸性の磁気異方性が観察された。圧延磁気異方性は、規則-不規則臨界温度での熱処理によって回復したことから、この誘導異方性の原因は、図1・2に示した転位によるものではなく、APB上に存在するFe-Fe原子対の方向性規則配列に原因していることを示した。

さらに、熱処理温度 T_a を上昇させると、再び磁気異方性は増加した。これは試料の寸法測定から形状磁気異方性によるものであり、試料を真球に再整形することによって消えることを確認した。

第5章は、ビッター法による磁区構造の観察結果である。磁区構造を決める要因は結晶磁気異方性定数 K_1 の値である。不規則状態では $K_1=0$ であるから理論的には磁区構造は存在しない。本章では熱処理温度とニッケル濃度によって K_1 、すなわち規則度を変え、規則度の変化にともなう磁区構造を観察した。観察された磁区構造はこれまでのどの報告よりも明瞭且つ詳細であった。ただし、 Ni_3Fe 合金の K_1 や磁束密度 B_s は鉄などに比べて小さく、磁区観察ではコロイド粒子の吸着に数時間が必要であった。

一方、磁区構造は応力やひずみの影響を受け易い。実験ではわずかに変形した試料に結晶磁気異方性と圧延誘導磁気異方性による二種類の磁壁が同時に観察された。コロイド滴下後に現れるこれら二種類の磁壁の時間差から、それらの異方性の大きさの違いを定性的に説明した。

不規則状態では磁区構造は観察されない。しかし、試料に刻点を打つことにより、刻点の周囲に同心円状の磁壁が観察された。これは磁気ひずみの逆効果による磁気異方性 K_λ が同心円状に発生したことによるものである。パーマロイにおいて K_λ は特に小さい効果であり、一般に K_λ による磁区構造の観察は困難である。

第6章では、 Ni_3Fe 合金における原子配列と磁化機構の関連を二つの方法で調べた。まず、合金単結晶から棒型試料を作製し、各結晶方位における H_c 、 μ_m を測定し、次に直径1mmの合金線の引張り変型し、変形量と磁化曲線との関連を測定した。

棒型試料における磁化曲線の規則度依存性も K_1 の変化に対応しており、規則状態では $\langle 111 \rangle$ 方向が容易方向、 $\langle 100 \rangle$ が困難方向になる。しかし、不規則状態では磁化曲線に異方性は認められなかった。ヒステリシス曲線の測定において H_c 、 μ_m の規則度依存性は規則-不規則臨界温度で極値を示した。また、 H_c 、 μ_m の濃度依存性では、化学量論組成において極値を示した。本論文ではこれらの結果から H_c 、 μ_m の規則-不規則変化を図1・1に示したAPD、APBの変化に関連させて説明した。

一方、 Ni_3Fe 合金線の引張り変形においては、磁化曲線の測定結果から変形量 ε と H_c 、 μ_m の関係を測定したが、実験結果はKerstenの磁化機構モデルを用いて説明できることを明らかにした。すなわち、歪 ε がゼロから10%付近までの範囲において、 H_c と ε との間には、 $H_c \propto \varepsilon^{1/2}$ の関係のあることが認められる。

引張り変形した試料には図 1・2 に示したように APB と転位が発生し、それらが保磁力増加の原因と考えられる。熱処理によって磁気特性を回復させたところ、保磁力 H_c は 500℃ 付近の熱処理で変形以前の値に戻った。このことから塑性変形による保磁力の増加の原因は、転位によるものではなく逆位相境界 APB における異方性磁界によるものであることが確認された。

第 7 章は結論で、上に述べた研究成果を 6 項目にまとめた。

パーマロイの微細素子や薄膜素子においては個々の作製条件や使用条件が異なっており、素子の特性を統一的に議論することは困難である。本研究は組成、熱処理、応力等の条件を設定し、原子の環境効果という観点から Ni_3Fe 規則合金の磁性を体系的に調べたものであり、本研究結果はパーマロイ系合金素子の作製や動作解析における基礎データとなる。

審査結果の要旨

パーマロイは磁気ヘッドや各種マイクロ磁気デバイスなどに広く使われているが、本来の軟磁気特性を有効に発揮させているとは限らない。著者は、従来になく規則度の高いNi₃Fe合金を作製し、応力などによる結晶格子の変形や欠陥などの原子環境の乱れが磁気特性に与える影響を、熱処理や組成ずれなどの影響も含めて詳細に調べた。本論文はそれらの成果をまとめたもので、全編7章からなる。

第1章は序論であり、パーマロイ関連の研究経緯と本研究の動機および目的を述べている。

第2章では、従来より規則度の高いNi₃Fe合金単結晶の作製法と規則度の制御法、評価法などについて述べている。規則度を結晶磁気異方性定数 K_1 で判定できることを明らかにしたのは、有用な成果である。

第3章では、規則度の高いNi₃Fe合金を熱処理で不規則化し、磁気ひずみ定数や弾性定数、格子定数の規則度依存性を調べ、 $\langle 100 \rangle$ と $\langle 111 \rangle$ 方向での磁気ひずみ定数の大きさが規則と不規則状態で逆転することを示している。

第4章では、Ni₃Fe合金の磁気異方性と規則度との関連について調べ、結晶磁気異方性定数 K_1 は、規則状態では化学量論組成で最小値をとり、不規則状態では75% Ni-Fe付近でゼロになることを確認している。さらに磁気ひずみ定数と弾性定数を用いて磁気ひずみによる異方性定数 K_2 を算出して、 K_1 がゼロでも K_2 の影響が無視できないことを指摘している。

第5章では、規則度の差異に伴う磁区構造の変化と結晶磁気異方性定数 K_1 との関係を調べ、規則状態では磁化容易な $\langle 111 \rangle$ 方向に 180° 磁壁が観察されるが、規則-不規則の中間状態では磁区が細分され、不規則状態では観察できなくなること、また不規則状態の試料では磁気ひずみの逆効果による磁気異方性が生じ同心円状磁壁が観察されること、などを明らかにしている。

第6章では、Ni₃Fe合金単結晶の保磁力や透磁率の規則度依存性を調べ、これらが規則-不規則臨界温度付近でともに極値をとり、化学量論組成でそれぞれ最小および最大値をとること、これは熱処理などにより原子配列の逆位相境界で囲まれる領域が成長、細分あるいは消滅するためであることを明らかにしている。

第7章は結論である。

以上要するに本論文は、従来になく規則度の高いNi₃Fe合金単結晶を作製し、理想的な原子配列状態から不規則状態まで、熱処理や組成変化、応力などによって原子環境を変化させ、磁気特性との関連を明らかにしたもので、磁気工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。